

Идентификация электронно-оптических переходов в области примесных состояний в E_0 -спектрах фотоотражения GaAs

© Р.В. Кузьменко[¶], Э.П. Домашевская

Воронежский государственный университет,
394693 Воронеж, Россия

(Получена 8 мая 2001 г. Принята к печати 12 июля 2001 г.)

В спектрах фотоотражения, измеряемых на кристаллических подложках GaAs со средним уровнем легирования в области фундаментального перехода E_0 при комнатной температуре, идентифицированы спектральные компоненты, возникающие в области электронно-оптических переходов с участием примесных состояний. Для идентификации были использованы фазовый анализ экспериментальных спектров и проведение серии измерений спектров при различной плотности лазерного возбуждения. Экспериментально определены зависимости величины примесной компоненты и фазы запаздывания от плотности лазерного возбуждения. Путем анализа экспериментальных данных установлено, что на возникновение компоненты сильное влияние оказывает состояние поверхности образца.

Спектроскопия фотоотражения (ФО) является широко используемым неразрушающим модуляционно-оптическим методом исследования электронных, оптических и структурных свойств полупроводниковых кристаллов, их поверхностей и границ раздела. Однако чрезвычайно высокая чувствительность спектров ФО к условиям проведения эксперимента или характеристикам образца часто приводит к двусмысленным результатам при интерпретации спектров. В частности, несмотря на относительно частое наблюдение спектральных структур в энергетической области ниже энергии фундаментального перехода, до сих пор не выработан единый взгляд на причины их возникновения. Так, первоначально предполагалось, что за возникновение спектральных структур в низкоэнергетической области могут быть ответственны либо вызванное эффектом Франца–Келдыша уширение зон, либо модуляционные процессы в области экситонных переходов [1,2]. Однако проведенный в опубликованных за последние 15 лет работах [3–11] анализ спектров электроотражения и фотоотражения показал, что в некоторых случаях форма спектральных структур в низкоэнергетической области не может быть воспроизведена расчетом в рамках выше названных моделей, а их энергетическое положение варьируется от области экситонных переходов до областей на 30–70(!) мэВ ниже E_0 . Поскольку обнаруженные спектральные структуры по величине были сравнимы с электромодуляционной компонентой, их объяснение при помощи модуляционных процессов в области примесных переходов казалось несколько противоречивым (для невырожденных полупроводников плотность состояний в зонах по крайней мере на несколько порядков выше плотности примесных состояний). Тем не менее теоретические расчеты показали, что в случае модуляции одной из характеристик примесных переходов (энергии перехода, уровня занятости или энергии уширения) наблюдение примесных модуляционных компонент,

сравнимых по величине с модуляционной компонентой для перехода ⟨валентная зона⟩–⟨зона проводимости⟩, возможно даже для относительно низких плотностей примесных состояний (начиная от 10^{15} см⁻³). Однако в этом случае возникает вопрос, почему сообщения о наблюдении примесных структур в спектрах ФО так редки в литературе. Например, после первого наблюдения примесных структур в спектрах электроотражения GaAs Серафином в 1966 г. [12] первый подробный анализ примесных спектральных компонент был предпринят только в 1985 г. [6].

Мы предполагаем, что примесные компоненты относительно часто присутствуют в электромодуляционных и фотомодуляционных спектрах прямозонных полупроводников, однако в случае сильного спектрального перекрытия с широкой E_0 -компонентой ФО, обусловленной собственными состояниями, они либо визуально не наблюдаются, либо ошибочно интерпретируются как экситонные компоненты. В работе предлагаются методы идентификации примесной компоненты в случае сильного спектрального перекрытия. Также будет показано, что возникновение примесной компоненты не может быть описано только в рамках электромодуляционного механизма, и на ее присутствие в спектре сильное влияние оказывает состояние поверхности образца.

Все измерения спектров ФО $\Delta R/R = f(E)$ проводились при комнатной температуре на установке, устройство и способ функционирования которой описаны в [13]. Для модуляции использовался красный He–Ne-лазер (длина волны $\lambda = 632.8$ нм) или синий He–Cd-лазер (длина волны $\lambda = 442.5$ нм). Используемые значения плотности лазерного возбуждения (ПЛВ) лежали в диапазоне $L = 0.5–4$ Вт/см². Измерения проводились на пассивированных Ga₂Se₃ и легированных кремнием подложках *n*-GaAs(100) ($E_0 = 1.424$ эВ) с концентрацией носителей заряда $n \sim 10^{16}$ см⁻³. Толщина пассивирующего слоя составляла ~ 10 нм. Для проведения фазового анализа (ФА) спектров [14] использовался двухканальный фазочувствительный усилитель (ФЧУ) SR850.

[¶] E-mail: roman@ftt.vsu.ru

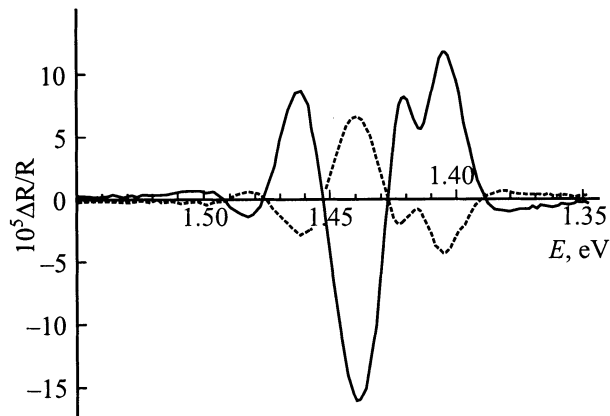


Рис. 1. Составляющие X (сплошная линия) и Y (штриховая линия) экспериментального E_0 -спектра фотоотражения пассивированной Ga_2Se_3 подложки n - GaAs ($n = 5 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$).

На рис. 1 представлены X - и Y -составляющие E_0 -спектра ФО пассивированной Ga_2Se_3 подложки n - GaAs ($n = 5 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$), измеренные без предустановки фазы ФЧУ с голубым He-Cd -лазером при частоте модуляции $f = 2500$ Гц. Осцилляции Франца–Келдыша в высокоэнергетической области показывают, что спектр содержит электромультипликативную E_0 -компоненту, обусловленную переходом (валентная зона)–(зона проводимости) и измеряемую в среднеполевом режиме. В области низкоэнергетического плеча главного пика этой компоненты наблюдается перекрытие с низкоэнергетической компонентой. Построение фазовой диаграммы дает в качестве фазовой линии петлевою структуру [14], что указывает на присутствие в спектре двух компонент с различными значениями фаз запаздывания или характеристических временных постоянных, представляющих собой в первом приближении время запаздывания модуляционного сигнала по отношению к сигналу возбуждения.

Поскольку фазы спектрально перекрывающихся компонент различны, то в рамках ФА может быть проведено их разделение. С этой целью была определена фаза для электромультипликативной компоненты в области ее однокомпонентности. Затем была предпринята предустановка внутренней фазы ФЧУ с таким расчетом, чтобы подавить эту компоненту в канале X . Благодаря этому низкоэнергетическая компонента была измерена в неискаженном виде (рис. 2). Спектральная линия низкоэнергетической компоненты качественно совпадает с так называемыми "спектральными формами первой производной", известными из литературы [3,6,8,9,11] для примесных компонент. Однако, хотя выделенная низкоэнергетическая компонента и не имеет типичной для экситонных компонент низкополевой формы, из-за ее близкого положения к энергии перехода E_0 одна только форма линии не может в данном случае рассматриваться в качестве удовлетворительного доказательства ее "примесной" природы (пик лежит вблизи энергии экситонных переходов).

В качестве следующего шага для идентификации природы низкоэнергетической компоненты была предпринята серия экспериментов с изменением ПЛВ. Поскольку фаза низкоэнергетической компоненты отличается от фазы среднеполевой электромультипликативной компоненты, очевидно, что эти компоненты возникают либо в разных областях образца, либо в результате различных модуляционных процессов. В том и другом случае можно ожидать различной зависимости величины компонент от ПЛВ.

X -компоненты спектра, измеренные с различными значениями ПЛВ в пределах $L = 2.8 - 0.53 \text{ Вт/см}^2$, представлены на рис. 3. Поскольку снижение ПЛВ приводило к спаду величин обеих спектральных компонент, была проведена нормировка по высоте второй осцилляции Франца–Келдыша. Из рисунка видно, что уменьшение ПЛВ ведет к быстрому спаду вклада низкоэнергетической компоненты в результирующий спектр. Однако проведение измерений с предустановкой фазы ФЧУ показывает, что форма спектральной линии низкоэнергетической компоненты остается неизменной.

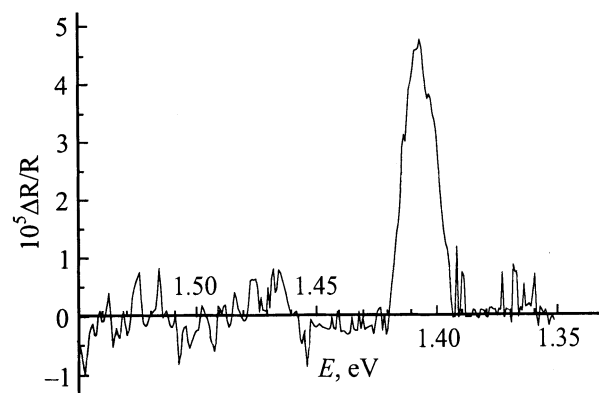


Рис. 2. Выделенная при помощи предустановки фазы ФЧУ низкоэнергетическая компонента.

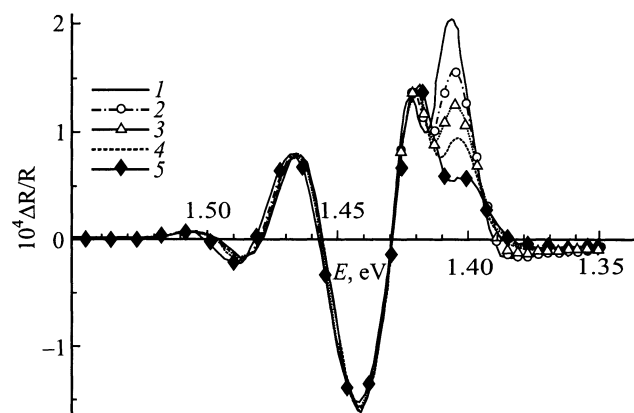


Рис. 3. X -компоненты спектра фотоотражения, измеренные при различных значениях плотности лазерного возбуждения L , Вт/см^2 : 1 — 2.8, 2 — 1.74, 3 — 1.26, 4 — 0.89, 5 — 0.53.

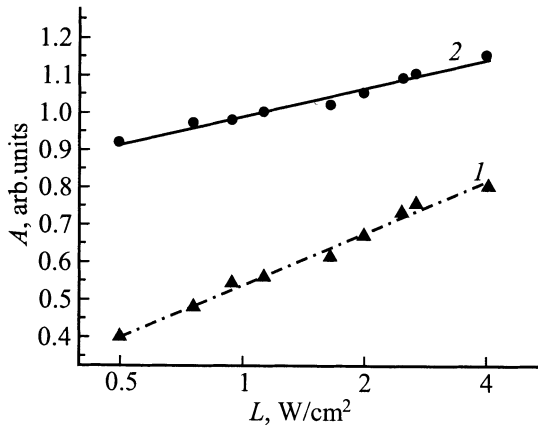


Рис. 4. Зависимости $A(L)$ для низкоэнергетической (1) и электромультипликативной (2) E_0 -компонент.

Для проведения количественного анализа зависимостей величин компонент от плотности лазерного возбуждения нами были введены амплитуды или амплитудные факторы (A) для низкоэнергетической и электромультипликативной E_0 -компонент. Поскольку форма спектральной линии низкоэнергетической компоненты оставалась неизменной, для нее в качестве амплитудного фактора могла быть использована высота пика. Для среднеполевой компоненты из-за зависимости формы спектральной линии от уровня модуляции поверхностного поля введение понятия амплитудного фактора сталкивается с существенными затруднениями. Однако проведенные в рамках обобщенной многослойной модели расчеты [15] показывают, что в области средних и низких значений уровня модуляции электрического поля форма линии осцилляций Франца–Келдыша, их период и энергетическое положение остаются практически неизменными и определяются только значением электрического поля при отсутствии освещения. Напротив, величина сигнала в этой области определяется только уровнем модуляции поверхностного электрического поля. Таким образом, является правомерным использование величины осцилляций Франца–Келдыша в качестве амплитудного фактора среднеполевого электромультипликативного сигнала. Для оценок мы использовали величину второй положительной осцилляции Франца–Келдыша. Определенные зависимости $A(L)$ для обеих компонент представлены на рис. 4. Из рисунка видно, что для обеих компонент обнаружена логарифмическая зависимость амплитуды от ПЛВ.

Обнаруженное поведение низкоэнергетической компоненты не может быть объяснено в рамках экситонной модели. Во-первых, изменение ПЛВ вызывает изменение уровня модуляции поверхностного электрического поля, что должно отразиться в изменении формы спектральной линии экситонной компоненты. Во-вторых, экспериментальные результаты исследований влияния ПЛВ на экситонную компоненту [16] показывают, что относитель-

ная амплитуда экситонной структуры (по отношению к электромультипликативной компоненте) падает при увеличении ПЛВ. Таким образом, наблюдаемая низкоэнергетическая компонента должна быть приписана модуляционным процессам, протекающим в области примесных электронно-оптических переходов. Более быстрый рост величины примесной компоненты по отношению к электромультипликативной E_0 -компоненте был также обнаружен в [4].

Нами также была проведена оценка фаз (φ) компонент для различных значений ПЛВ (см. рис. 5). При этом было установлено, что фаза E_0 -компоненты очень чувствительна к изменению ПЛВ, в то время как фаза примесной компоненты реагирует на изменение ПЛВ довольно слабо. Различие в поведении фаз компонент позволяет предположить, что за возникновение примесной компоненты ответствен процесс, напрямую (а не опосредованно, как для электромультипликативной компоненты) связанный с генерацией больших плотностей неравновесных носителей заряда. Слабая зависимость фазы примесной компоненты от величины ПЛВ хорошо коррелирует с выдвинутым в [6,9] предположением о том, что за формирование примесного сигнала ФО ответственна перезарядка примесных центров.

К сожалению, из анализа невозможно было определить, какими именно примесными состояниями обусловлено появление примесной компоненты. Поскольку исследовавшийся образец был легирован кремнием, структура ФО, по-видимому, должна быть приписана переходу с участием примесного уровня Si. Обнаруженный в [7] в спектрах электроотражения GaAs примесный пик находился в этой же энергетической области и был приписан донорному уровню Si.

Проведение измерений на образце с красным модулирующим лазером в том же диапазоне значений ПЛВ давало похожие спектры, однако низкоэнергетическая компонента была в них выражена слабее. Поскольку для крас-

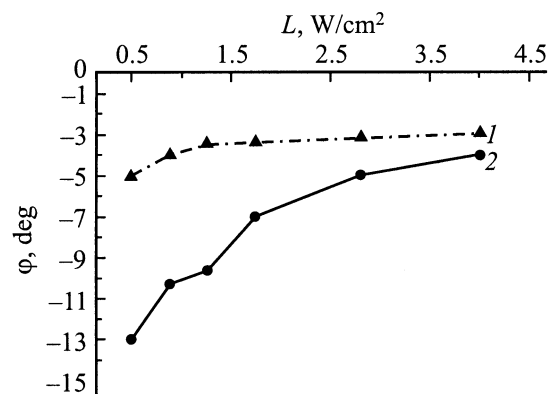


Рис. 5. Зависимости фазовых углов низкоэнергетической (1) и электромультипликативной (2) E_0 -компонент от плотности лазерного возбуждения. Фазовые углы на рисунке взяты отрицательными, чтобы показать запаздывание компоненты по отношению к возбуждению.

ного лазера область генерации неосновных носителей заряда лежит глубже, мы предполагаем, что за возникновение примесной компоненты ответственны примесные состояния, лежащие вблизи поверхности образца. Для подтверждения этого предположения нами были проведены измерения на различных участках поверхности образца. При этом было обнаружено резкое изменение величины примесной компоненты. В довершение нами был удален пассивирующий слой. Анализ полученного спектра, имеющего форму линии, опубликованную в [16], показал, что спектр больше не содержит примесной компоненты, однако в низкоэнергетической области теперь была обнаружена сильная экситонная компонента. Хотя причины исчезновения примесной компоненты ФО не ясны, понятно, что ее исчезновение обусловлено модификацией состояния поверхности образца. Это свидетельствует о том, что примесные компоненты ФО — это либо чисто поверхностный феномен, либо их появление обусловлено состояниями, лежащими близко к поверхности образца. Корреляция между состоянием поверхности и наблюдением примесной компоненты была также обнаружена в [5,8].

Также вызывает большой интерес тот факт, что примесные компоненты ФО, как правило, не наблюдаются одновременно с экситонными компонентами. Таким образом, можно предположить, что модуляционные процессы, ответственные за возникновение экситонных и примесных компонент, являются конкурирующими процессами.

В заключение при помощи проведенной в работе комбинированной методики исследований в спектре ФО GaAs была идентифицирована примесная компонента, определена ее спектральная форма, определена фаза запаздывания и исследована зависимость амплитуды и фазы запаздывания этой компоненты от плотности лазерного возбуждения. Меньшее по сравнению с электро-модуляционной компонентой значение фазы примесной компоненты и ее более слабая зависимость от ПЛВ позволяют предположить, что за возникновение примесной компоненты ответствен процесс, напрямую связанный с генерацией больших плотностей неравновесных носителей заряда. Проведенные исследования показывают, что состояние поверхности имеет решающее значение для наблюдения примесной компоненты.

Список литературы

- [1] E. Gutsche, H. Lange. Phys. Stat. Sol., **22**, 229 (1967).
- [2] D.E. Aspnes. Surf. Sci., **37**, 418 (1973).
- [3] S.K. Brierley, D.S. Lehr. J. Appl. Phys., **67**, 3878 (1990).
- [4] C. Durbin, J.P. Estrera, R. Glosser, W. Duncan, R.L. Henry, P. Nordquist, N. Bottka, D.K. Gaskill. Appl. Phys. Lett., **61**, 1549 (1992).
- [5] M. Gal, R. Shi, J. Tann. J. Appl. Phys., **66**, 6196 (1989).
- [6] O.J. Glembocki, N. Bottka, J.E. Furneaux. J. Appl. Phys., **57**, 432 (1985).
- [7] L. Kassel, J.W. Garland, P.M. Raccah, C. Coluzza, A. Neglia, A. DiCarlo. Appl. Surf. Sci., **56–58**, 356 (1992).
- [8] S.L. Mioc, P.M. Raccah, J.W. Garland. Mater. Res. Soc. Symp. Proc., **261**, 45 (1992).
- [9] A.N. Pikhtin, V.M. Airaksinen, H. Lipsanen, T. Tuomi. J. Appl. Phys., **65**, 2556 (1989).
- [10] M. Sydor, J. Angelo, J.J. Wilson, W.C. Michtel, M.Y. Yen. Phys. Rev. B, **40**, 8473 (1989).
- [11] R.L. Tober, J.D. Bruno. J. Appl. Phys., **68**, 6388 (1990).
- [12] B.O. Seraphin. J. Appl. Phys., **37**, 721 (1966).
- [13] S. Hildebrandt, M. Murtagh, R. Kusmenko, W. Kircher, G.M. Crean, J. Schreiber. Phys. St. Sol. (a), **152**, 147 (1995).
- [14] A.B. Ганжа, В. Кирхер, Р.В. Кузьменко, Й. Шрайбер, С. Хильдебрандт. ФТП, **32**, 272 (1998).
- [15] Р. Кузьменко, А. Ганжа, Э.П. Домашевская, В. Кирхер, Ш. Хильдебрандт. ФТП, **34**, 1086 (2000).
- [16] Р. Кузьменко, А. Ганжа, Й. Шрайбер, С. Хильдебрандт. ФТТ, **39**, 2123 (1997).

Редактор Л.В. Шаронова

Electronoptical transitions identified within the range of impurity states in E_0 -photoreflectance spectra of direct-band-gap semiconductor GaAs

R.V. Kusmenko, E.P. Domashevskaya

Voronezh State University,
394693 Voronezh, Russia

Abstract Spectral components related to electronoptical transitions with participation of impurity states have been measured in photoreflectance spectra on the medium-doped crystalline GaAs substrates within the range of the E_0 fundamental transition at room temperature. For their identification the phase analysis of experimental spectra as well as the spectra measurements for various density of the laser excitation were used. In the frames of the latter technique, the dependence of the impurity component contribution on the density of laser excitation was determined. Experimental data treatment proved that the appearance of this component was strongly affected by the state of the sample surface.